

Rec'd T/PTO 24 JUN 2004

特 許 協 力 条 約

P C T

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 15 SEP 2003

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 K927-PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO2/13813	国際出願日 (日.月.年) 27.12.02	優先日 (日.月.年) 27.12.01
国際特許分類 (IPC) Int. Cl. ¹ C03C27/10, H01L21/304, B08B7/00, G02B1/10		
出願人 (氏名又は名称) 小貫 英雄		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。 <input checked="" type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u>11</u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。 I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 06.08.03	国際予備審査報告を作成した日 22.08.03	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 塩見 篤史	4T 9629
電話番号 03-3581-1101 内線 3465		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1, 4, 10, 11 ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書 第 2, 3, 3/1, 5, 5/1, 6, 7, 7/1, 8, 9 ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 請求の範囲 第 1-3 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1-4 ページ/図、 出願時に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲 1-3

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲 1-3

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲 1-3

有

請求の範囲

無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

国際調査報告で提示された引用文献

1. JP 10-282339 A(工業技術院長等)1998.10.23
2. JP 10-282499 A(工業技術院長等)1998.10.23
3. JP 5-251415 A(浜松ホトニクス株式会社)1993.09.28

引用文献1、2にはそれぞれ、少なくとも一方が紫外光に対して透明な媒質からなる2つの物質の間にテトラメトキシシラン等のアルコキシドを存在させ、そのアルコキシド部分に紫外光を照射することにより、当該2物質を接合するシリカガラス等の透明物質の接合方法が記載されている。

引用文献3には、紫外光を透過する石英ガラス板を光洗浄装置における光源部と洗浄室の間の窓に用いること、光取り出し窓に用いることが記載されている。

引用文献1乃至3には、前記2物質の間隙のむらが少なくなり密着性がよくなるように外側から機械的圧力を用い、かつアルコキシド部分に200nmより短波長の紫外光を照射する点について記載も示唆もされておらず、当該技術分野の専門家が単に先行技術から明白に又は論理的に導くことができるものであるともいえない。

供することを目的とする。

上記の課題に関連する先行技術として紫外光励起によるアルコキシシドの薄膜ガラス化技術が存在する。例えば「Applied Physics Letter, Vol. 69, No. 4 (1996) p. 482~484」、特開平10-282339号公報、特開平10-282499号公報に開示されている。特開平10-282339号公報及び特開平10-282499号公報は「Applied Physics Letter, Vol. 69, No. 4 (1996) p. 482~484」の接着技術の応用発明であり、いずれも、基板に紫外線照射（第1工程）をした後、その紫外線照射をした部位に接着液を塗布し再度紫外線照射をして SiO_2 の合成を行うこと（第2工程）により接着を行うことを記載している。

これに対して、本発明者はその後アルコキシシドの接着技術に関してさらに研究を行い、接着液塗布後の紫外線照射だけで接着を行うことができることを見い出し、本発明を完成するに至ったものである。

また、特許第2901963号には、このようなアルコキシシドを原料にした光励起による薄膜形成法の応用例として、テレビのブラウン管表面の反射防止膜の形成や機能性有機物のドーピング、光触媒の製造、微細パターン膜の形成、光感光性材料等の薄膜化などに採用出来ることが記載されている。

しかし、これらの先行技術は、短波長の紫外光を透過でき、簡便で、高品質の接着方法に関するものではない。

また、石英ガラス板を紫外光透過窓に用いた光洗浄装置は知られている（例えば、特開平5-251415号公報）。しかし、既存の石英ガラス板の大きさには制約があり、装置の大型化に限界がある。

発明の開示

本発明者は、上記目的を達成するために鋭意努力検討し、少なくとも一方が紫外光に透明な物質はアルコキシドを接着剤としかつ特定の条件で紫外光を照射すれば接着できること、しかもその接着部分は紫外光に対して透明であることを確認して、紫外光に対し透明で且つ室温で簡便に行える高品質の接着方法を開発することに成功したものである。こうして、本発明によれば下記発明が提供される。

(1) 少なくとも一方が紫外光に対して透明な媒質からなる2つの物質の間にアルコキシドを存在させ、当該2物質の間隙のむらが少なくなり密着性がよくなるように外側から機械的圧力を加え、紫外光の吸収を防止するために窒素ガスまたは稀ガス雰囲気を用い、かつ当該アルコキシド部分に200nmより短波長の紫外光を照射することにより、当該2物質を接着することを特徴とする透明物質の接着方法。

(2) 2枚以上の石英ガラス板を横方向に上記(1)に記載の接着方法で接着して大面積化されておりかつ接着部も波長350nmより短波長の紫外光に透明であることを特徴とする接着された石英ガラス板。

(3) 1個又は複数個のエキシマランプあるいは低圧水銀ランプを具備する光源部と、これらの光源から洗浄室に配置した被洗浄物に紫外光を照射して被洗浄物を洗浄する光洗浄装置において、上記(2)に記載の接着された石英ガラス板を光源部と洗浄室の間の窓に用いたことを特徴とする光洗浄装置。

図面の簡単な説明

図1はガラス板の形状を示す図である。

図2は光源からの紫外光をガラス板に照射している状態を示す図である。

ルコキシドを接着剤として用い、かつ紫外光を照射して接着することを特徴とするものである。

本発明者は、アルコキシドが紫外光を吸収して分解し、ガラスその他の無機および有機固体物質と結合を形成して、1種の接着剤として作用すること、しかも接着を形成した後では紫外光を透過する性質を有することを見出し、確認した。紫外光照射後のアルコキシドは一般的にはガラス化しているものと考えられる。

本発明は原理に制約されることは意図しないが、アルコキシドが接着作用を示す理由としては、アルコキシドとしては特にガラス用途ではケイ素アルコキシドが有用であるが、テトラメチルオキシシラン (T M O S)、テトラエチルオキシシラン (T E O S) などのケイ素アルコキシドは紫外光を照射すると有機基を放出して分解してケイ素－酸素結合部分が各種の無機物質あるいは有機物質との間の結合を形成することが可能にされるので、無機物質あるいは有機物質のいずれでもアルコキシドで接着することが可能になるものと考えられる。ケイ素アルコキシドは理想的にはガラス化して $S i O_2$ になるが、本発明の目的からは必ずしも完全にガラス化して $S i O_2$ にならなくてもよく、必要な接着および紫外光透過性が得られれば目的は達成される。また上記ではケイ素アルコキシドについて説明したが、その他のアルコキシドであるジルコニウムアルコキシド、チタンアルコキシド、イットリウムアルコキシド、ゲルマニウムアルコキシドなど金属アルコキシドその他のアルコキシドおよびそれらの混合物でも同様に反応する。またアルコキシド基も特に限定されず、またモノマーのみならず、オリゴマー、ポリマー化したものでもよい。製造条件として塗工性や分解揮発成分（有機基）の大きさなどが考慮されて好適なものを選択すればよい。

また本発明において紫外光は、200nmより短波長の真空紫外

光が好適に用いられる。

本発明で用いる紫外光の光源は限定されないが、例えば、低圧水銀ランプ、172nm付近に波長があるエキシマランプなどを例示することができる。またアンジュレータを含む放射光も使用できる。光源は紫外光を含んでいればよく、またレーザー光源でもよい。

紫外光を照射する場合、空気中には紫外光を吸収する物質、特に酸素が含まれているので、被接着物質を囲む雰囲気を窒素や稀ガスで少なくとも部分的に置換してあるいは真空中で紫外光照射することが照射効率の点から好ましい。

紫外光を照射する条件、すなわち、波長、強度、時間、雰囲気、温度などは適宜選択すればよいが、本発明はガラス溶融接着法のように高温加熱する必要がないので、被接着物質（被着体）を熱損傷しないことは利点である。例えば、室温でもよい。

以下、本発明により2物質を接着する方法を図面を参照してより具体的に説明する。

本発明の紫外光透明物質の接着方法は、例えば、図1、図2に示す如く、2枚の石英ガラスを重ねて貼り合わせる接着に利用でき、実際に2枚の紫外光透明物質の板の主面どうしを重ねて貼り合わせ接着の有用性は明らかであり、各種の応用が考えられる。2枚以上の石英ガラスを横方向に接着してより大面積の石英ガラス板を製作し、かつその拡大面積石英ガラス板が紫外光透明であるような製品を製造する場合に、本発明は特に有用であると考えられる。例えば、半導体製造工程での光洗浄（紫外光洗浄）の光源装置にエキシマランプが用いられているが、エキシマランプは窒素雰囲気中に置く必要があるため、光取出し窓に石英ガラスが用いられている。従って、1枚の石英ガラスの寸法が光源の寸法を制約している

ので、本発明によって製造される紫外光透過性のある接着をした石英ガラスを用いれば寸法の制約がないので、所望の大きさの光源装置を製造する可能性を提供する。

さらに、化学分析などに用いる直方体の石英ガラスセルを5枚の石英ガラス板を貼り合わせて作成したりあるいは石英ガラスの器具を作成することに本接着方法を用いること、また光学部品の作成やレンズの貼り合わせ等において各要素の接着に本接着方法を用いることが可能である。

このように2枚以上の板材を接着する方法の例を図2、図3A-3Fに示す。これらの図において、1a, 1bはガラス板、2はガラス積層体、3は接着部、4は接着用小板、6は光源、7は紫外光である。図3A-3Dの如く各種の形状で2枚のガラス板1a, 1bをつき合わせ、あるいは図3Eの如く端部を重ね合わせ、あるいは図3Fの如く接合用小板4を用いて接着すればよい。

基本的には、2物質の一方あるいは両方にアルコキシド液を付着あるいは塗布し、当該物質を重ね合わせあるいはつなぎ合わせ、アルコキシドを含む部分に紫外光を照射することにより、あるいは2物質の間隙にアルコキシド液を注入しアルコキシドを含む部分に紫外光を照射することにより、アルコキシドをガラス化させるとともに接着の効果を生じさせ、2物質を接着させることができる。(図2参照)

2物質の接着面に相当する部分を予め研磨し、当該表面を平滑化する工程を有することが好ましい。

さらに、前記接着工程において、接着性を高めるために、2物質の接着面に相当する部分を洗浄する工程を有することがより好ましい。

さらに、本発明では接着工程において、アルコキシドを含む部分

に紫外光を

照射する工程中に、2物質に両側から機械的圧力を加えて、接着性を高める。

接着工程において、紫外光を吸収する空気中の分子を排除し紫外光を効率良く利用するために、窒素ガスあるいは稀ガスの雰囲気中で紫外光を2物質に照射することが好ましい。

こうして本発明の接着方法を利用して石英ガラスを横方向に接着することで、大面積の石英ガラス板を得ることができた。本発明の接着方法を利用して石英ガラスの接着面の全面を SiO_2 で接着することで、接着された石英ガラス板の接着強度は従来予想される以上に顕著に高く、石英ガラス板どうしは完全に一体化されていることが確認された。接着部の剥離を気にすることなく、完全に一枚の石英ガラス板として使用することが可能であった。接着部を観察すると、接着面の全面で接着が形成されていること、接着に隙間がないこと（少なくとも接着面を横断する空隙は存在しない）、接着部が気密であることなどを確認できた。

図4にこうして本発明により提供される接着された大面積石英ガラス板11を紫外光光源12の窓として用いる紫外光光源装置の1例を示す。図4の紫外光光源装置10は光洗浄装置の実施形態であり、容器13内に洗浄されるべき物体14を配置し、必要であれば移動可能に配置し、紫外光光源12から紫外光15を大面積石英ガラス板11の窓を介して洗浄されるべき物体14に照射することで、物体14を光洗浄するものである。本発明の光洗浄装置は、石英ガラス板が接着されて大面積化されるために、窓11が大型化でき、従って一度に光洗浄できる物体の大きさの制約が実質的に無くなり顕著に大きくできるので、光洗浄の効率を大幅に向上させることが可能である。

実施例

以下、本発明の実施例を説明するが、以下の実施例は、本発明を好適に説明する一例に過ぎず、本発明をなんら限定するものではない。

(実施例 1)

図 1 に示すように、厚さ 1 mm、一辺が 2 cm の正方形の石英ガラス板を 2 枚 1 a, 1 b 用意し、各石英ガラス板の一つの面にアルコキシドであるテトラメチルオキシシラン (TMOS) [成分は TMOS モノマー 91.8%、TMOS オリゴマー 3.4%、水・メタノール 4.8%] を 1 滴たらし、TMOS で濡れた石英ガラスの面同士を重ね合わせた後、この 2 枚の石英ガラス板 2 に、図 2 に示すように、キセノンエキシマーランプ 6 からの波長 172 nm にピークを持つ紫外光 7 を 60 分間照射した。この時のキセノンエキシマーランプ 6 と石英ガラス板 2 との距離は 2 mm であった。

その結果、2 枚の石英ガラス板 2 は強固に接着された。接着した 2 枚の石英ガラス板 2 の紫外領域の吸収スペクトルを測定したところ、波長 160 nm から短波長領域で吸収を示した。これは石英ガラス固有の吸収であり、このことから接着石英ガラス 2 は 160 nm まで紫外光を透過していることが証明された。

(実施例 2)

大きさが 50 mm × 20 mm、厚さ 4 mm の 2 枚の石英ガラス板の側面 (50 mm × 4 mm の面) を研磨して表面を平滑にした後、実施例 1 と同じ TMOS を研磨面の全面に塗布してから、実施例 1 と同様の方法で研磨面どうしを接着した。

得られた石英ガラス板の接着面は実施例 1 と同様に 160 nm までの紫外光を透過した。

得られた石英ガラス板の接着面を肉眼で観察すると、角度により

請 求 の 範 囲

1. (補正後) 少なくとも1方が紫外光に対して透明な媒質からなる2つの物質の間にアルコキシドを存在させ、当該2物質の間隙のむらが少なくなり密着性がよくなるように外側から機械的圧力を加え、紫外光の吸収を防止するために窒素ガスまたは稀ガス雰囲気を用い、かつ当該アルコキシド部分に200nmより短波長の紫外光を照射することにより、当該2物質を接着することを特徴とする透明物質の接着方法。

2. (補正後) 2枚以上の石英ガラス板を横方向に請求項1に記載の接着方法で接着して大面積化されておりかつ接着部も波長350nmより短波長の紫外光に透明であることを特徴とする接着された石英ガラス。

3. (補正後) 1個又は複数のエキシマランプあるいは低圧水銀ランプを具備する光源部と、これらの光源から洗浄室に配置した被洗浄物に紫外光を照射して被洗浄物を洗浄する光洗浄装置において、請求項2に記載の接着された石英ガラス板を光源部と洗浄室の間の窓に用いたことを特徴とする光洗浄装置。